



PARTIAL TRANSLATION OF JAPANESE EXAMINED PATENT  
PUBLICATION (Kōkoku) NO. 53-47514 (Reference A)

Title of the Invention:

Conductive Composite Ceramics having Small Thermal Expansion Coefficient

Examined Publication Date: December 21, 1978

Patent Application No.: 49-136811

Filing Date: November 28, 1974

Unexamined Publication No.: 51-62395

Unexamined Publication Date: May 29, 1976

Applicant: Tokyo Denki-kagaku Kogyo Corp.

Priority Claimed: none

SCOPE OF CLAIM FOR PATENT

1. A conductive composite ceramics having a small thermal expansion coefficient wherein a conductive material phase is at least partially continuously dispersed in a ceramics phase having a negative thermal expansion coefficient.

2. A conductive composite glass ceramics having a small thermal expansion coefficient wherein a conductive material phase is at least partially continuously dispersed in a glass ceramics phase having a negative thermal expansion coefficient.

DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION (EXCERPT)

The present invention relates to a novel electrically conductive ceramics having a small thermal expansion coefficient.

The conductive material used for the present invention includes a metal, carbon, a cermet, a metal nitride, a metal boride, a metal carbide, a metal silicide, a metal oxide and mixtures thereof. The metal may be silver, titanium or nichrom; the cermet may be titanium carbide-chrome; the metal nitride may be titanium nitride or aluminum nitride; the metal boride may be titanium boride and zirconium boride; the metal carbide may be silicon carbide or zirconium carbide; and metal silicide may be molybdenum silicide. The metal oxide may be a simple metal oxide (e.g.  $\text{ReO}_3$ ,  $\text{RuO}_2$ )

, and a metal oxoacid salt and an composite oxide (e.g.  $\text{LaTiO}_3$ ,  $\text{CaMnO}_3$ ,  $\text{LaMnO}_3$ ,  $\text{CaCrO}_3$ ,  $\text{SrCrO}_3$ ,  $\text{LaCrO}_3$ ,  $\text{LaCoO}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{La}_2\text{NiO}_4$ ,  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ). Further, the metal oxide may be one which is based on an oxide (e.g.  $\text{Cu}_2\text{O}$ ,  $\text{TiO}$ ,  $\text{VO}$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{CoO}$ ,  $\text{NiO}$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{CdO}$ ,  $\text{Ti}_2\text{O}_3$ ,  $\text{V}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{MoO}_3$ ,  $\text{WO}_3$ ), or a metal salt of oxoacid an composite oxide (e.g.  $\text{CaTiO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{LaTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{CaMnO}_3$ ,  $\text{LaMnO}_3$ ,  $\text{CaCrO}_3$ ,  $\text{SrCrO}_3$ ,  $\text{LaCrO}_3$ ,  $\text{LaCoO}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{La}_2\text{NiO}_4$ ,  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ,  $\text{LiFe}_3\text{O}_8$ ,  $\text{MgWO}_4$ ); and modified to give a non-stoichiometric metal-to-oxide ratio such that the metal oxide has conductivity.

The ceramics having a negative thermal expansion coefficient includes (1) an eucryptite-type ceramics, i.e. a ceramics comprising 40 to 60 wt% of  $\text{SiO}_2$ , 20 to 50 wt% of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and 5 to 25 wt% of  $\text{Li}_2\text{O}$ , and an optional sintering aid such as ...; and (2) an aluminum titanate-type ceramics,

i.e. . . .

The glass ceramics having a negative thermal expansion coefficient includes one comprising 40 to 70 wt% of  $\text{SiO}_2$ , 15 to 40 wt% of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 3 to 17 wt% of  $\text{Li}_2\text{O}$ , and 2 to 10 wt% of  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$  or  $\text{P}_2\text{O}_5$  as a nuclei forming material, and optionally . . .

The conductive complex ceramics having a small thermal expansion coefficient according to the present invention can be produced by mixing a powder of a ceramics having a negative thermal expansion coefficient with a powder of a conductive material, or . . . ; optionally adding a clay, binder such as . . . , etc.; forming the mixture into a proper form; and firing at an appropriate temperature for the materials used, e.g. at a temperature of 950 to 1600 °C.

The conductive complex glass ceramics having a small thermal expansion coefficient according to the present invention can be produced by mixing powders of a glass ceramics-forming material in predetermined amounts; adding a powder of a conductive material to the mixture; heating the mixture at the temperature of 1300 to 1700 °C to glass-melt it; forming the obtained glass ceramics; and heat treating the formed body at a temperature of 700 to 900 °C.

The conventional conductive ceramic has a nonlinear conductivity in relation to temperature, and has a large negative conductivity-temperature relationship up to temperatures of a few hundred degrees Celsius. On the other hand, the composite ceramics of the present invention can have a linear, positive or negative conductivity-temperature relationship by selecting the kind of conductive material, and therefore can be used in a wide temperature range.

Further, the composite ceramics of the present invention can optionally be sintered into a dense structure in order to have high shock resistance, high mechanical strength, high chemical resistance at a higher temperature, and good heat conductivity.

As described above, since the composite ceramic of the present invention is conductive, it may be used for (1) a heater; (2) an electrode such as ...; (3) an anti-electrostatic member such as a sliding guide for a thread, a tape and like, and a rotation sliding parts; (4) a thermistor. ...

⑯日本国特許庁  
公開特許公報

⑪特許出願公開  
昭53—47514

⑤Int. Cl.<sup>2</sup>  
A 61 K 9/70  
A 61 L 15/06

識別記号

⑥日本分類  
30 C 45

厅内整理番号  
6617—44.

⑦公開 昭和53年(1978)4月28日  
発明の数 1  
審査請求 未請求  
(全 13 頁)

## ⑧温熱湿布剤

⑨特 賀 昭51—119319  
⑩出 賀 昭51(1976)10月6日  
⑪發明者 吉田利三郎  
東京都中央区京橋2丁目6番地  
6. 7 東洋インキ製造株式会  
社内  
同 海保恵亮  
東京都中央区京橋2丁目6番地  
6. 7 東洋インキ製造株式会  
社内  
同 井出勇作  
東京都中央区京橋2丁目6番地

6. 7 東洋インキ製造株式会  
社内  
⑫發明者 野田寛治  
筑紫野市大字常松320番地の93  
同 山形徹哉  
鳥栖市田代大官町838番地の4  
同 木田浩隆  
福岡市中央区天神3の10の20  
日本観光ビル508号  
⑬出 賀 久光製薬株式会社  
鳥栖市田代大官町408番地  
同 東洋インキ製造株式会社  
東京都中央区京橋2丁目6番地  
6. 7

## 明細書

## 1. 発明の名称

温熱湿布剤

## 2. 特許請求の範囲

1. 空気又は酸素の存在によって発熱する発熱剤層及び熱安定性の湿布剤層からなることを特徴とする温熱湿布剤。
2. 発熱剤層がアルカリ金属の硫化物若しくは多硫化物又はこれらの合水塩並びに炭化鉄若しくは炭素物質からなることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の温熱湿布剤。
3. 热安定性の湿布剤層が湿布用基剤及びその他湿布剤に必要な物質からなることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の温熱湿布剤。
4. 热安定性の湿布剤層が湿布用基剤、その他湿布剤に必要な物質及び湿布用溶剤からなることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の温熱湿布剤。
5. その他湿布剤に必要な物質が増粘剤、軟化剤、保湿剤である特許請求の範囲第3項又は第4項

## 記載の温熱湿布剤。

## 3. 発明の詳細な説明

本発明は温熱湿布剤に関するものである。温熱湿布剤は温熱療法用医薬品の一つであり、他に温湿パック剤、温湿布剤とも言われる。さて、温熱療法、即ち、外部から熱を加え疾患を治療する当該療法の歴史は古く、熱湯で温湿させたタオルを患部に当てる方法等は最も簡単な方法として親しまれている。又、今日においては、赤外線、電光浴、乾電法、サウナ、焼灼法、灸、温浴、蒸気浴、蒸気圧法、圧注浴、温水圧注、交代浴、気泡浴、渦流法、振盪浴、鉢泥浴、ハバートタンク、運動浴、電気水浴、温泉浴、バラフィン浴等の表在熱刺激による温熱療法が、そして更に、超短波療法、極超短波療法、超音波療法等の深部熱刺激による温熱療法等が周知である。特に、テンプン溶液が充填された袋を熱湯等の熱源で加熱し、患部に当て用いる器具として、商品名「ホットパック」及び電気を利用した発熱体のパットで患部を温める商品名「オンシップ」等が病院等ではよく用いら

光  
製  
藥光  
製  
藥

れている。處で温熱療法の一つである温熱湿布療法は他の療法において種々の器具、用品が開発されたにもかかわらず、前記した温めたタオルを患部に当てる程度の域を脱していない。その理由は現在市販されている湿布剤が全て冷湿布を主体としており、単にそれをお湯で暖めて使用する旨の指示をして温熱湿布剤として代用しているからである。従つて、温熱湿布剤としての効果は大変薄いものであり、又温熱の持続時間も10分間程度と大変短いもので到底製品として使用に供し得るものではない。しかし、皮膚の温度を上昇させ血管を拡張し、更に循環を促進して新陳代謝の亢進をはかり、そして、筋緊張の低下が期待出来、併せて、有効成分の短時間での吸收促進作用が望め鎮痛、鎮痙、消炎に顕著な効果がある温熱湿布療法は、非常に重要な療法であり、品質のよい温熱湿布剤の開発は從来から望まれていたことである。本発明者等は、温熱の持続時間が長く、且つその加熱温度も常に一定に調整出来てその取扱いが簡便な発熱剤と、そして、加熱することに対して安

定な湿布剤を具備する温熱湿布剤を開発する為に多くの研究を重ねたところ、アルカリ金属の硫化物もしくは多硫化物又はこれらの含水塩が炭素物質もしくは炭化鉄と混合して空気中で発熱するところの発熱剤と、熱に対して安定な湿布剤とを組合わせることにより、簡便で効果の高い温熱湿布剤が得られることを見出し、本発明を完成したのである。

本発明の温熱湿布剤は、酸素と接触して発熱する発熱剤層及び熱に対して安定な湿布剤層を具備するもので、更に詳細にはアルカリ金属の硫化物もしくは多硫化物又はこれらの含水塩、炭化鉄、炭素物質からなり、酸素と接触して発熱する発熱剤層及び熱に対して安定な湿布用基剤、その他湿布剤に必要な物質からなる熱安定性の湿布剤層からなるか、更にこの湿布剤層に薬剤を添加した熱安定性の湿布剤層からなることを特徴とするものである。

尚、発熱剤を積載した温熱湿布剤としては、特開昭50-54187及び特開昭50-54188

藥

藥

に示されたものが公知であるが、これらの発熱剤は、鉄粉を主成分とするもので、酸素及び水の共存する場合に始めて発熱するところから、本発明の発熱剤とは大きく相違し、更には前記公知資料には発熱剤と横層することに適した湿布剤層について何ら述べられていない。一方、本発明の温熱湿布剤は如上の構成によりなるもので、酸素の存在のみにて発熱する簡便さを有し、又湿布剤層も温熱療法に十分適したもので、加熱による層の破壊及び分解等は皆無に等しいものである。

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明は前記した如く発熱剤層と湿布剤層とかなる。

まず、最初に発熱剤層から説明すると、ここに用いられる発熱剤は、

(1) Li、Na、K、Rb、Cs等のアルカリ金属の硫化物もしくは多硫化物又はこれらの含水塩粉末の一種もしくは二種以上を単独又は混合したもの（以下、A成分という）に、

(2) カーボンブラック、活性炭、木炭、石炭、コー

クス、ピッチ、アスファルト、グラファイト等の炭素質物質もしくは炭化鉄（以下、B成分といいう）、

を混合したものであり、これを空気又は純酸素と接触させるか、もしくは化学反応により酸素を発生する物質を混入することにより、発熱を示すものである。尚、炭化鉄は、例えば特開昭50-22000号公報に示される方法等により得ることができる。

處で、温熱湿布療法において、通常患部への加熱温度は40°Cから60°Cが適当であり、好ましくは45°C～55°Cである。40°C以下では十分なる治療の効果が得られず又60°C以上では高温の為、患者が治療に耐え得ず又、火傷症状等も呈し、好ましくない。

又、温熱の持続時間は、15分間～6時間が適当であり、好ましくは1.0～3.0時間である。

15分間以下では温熱療法の効果が十分に得られず、又6時間以上は、後述する湿布剤層の乾燥度合及び患部への連続加熱による副作用、更には薬



特開昭53-47514(3)

剤の殆どの吸収時間等の関係から、好ましくない。

従って、A成分とB成分の配合比は発熱効率及び前記療法時の温度を十分考慮して設定されるもので、通常、A成分/B成分は10~90/90~10(重量部)、好ましくは、40/60~60/40(重量部)配合され、又当該配合物は通常8×12cmの広さにおいて、10~40g、好ましくは、20~30g用いることにより前記所望温度と高い発熱効率を得ることができる。

更に、前記A成分及びB成分の外、発熱及び放熱による急激な温度変化を抑制する為、必要に応じて熱に対して安定な種々の充填剤(C成分)を適宜配合することができる。この充填剤の例としては、木粉、木綿リンター等の天然繊維片、ポリエステル等の合成繊維片、発泡ポリスチレン、発泡ポリウレタン等の発泡体くず、シリカ粉末、多孔性シリカガル、芒硝、硫酸バリウム、酸化鉄、酸化アルミニウム等の無機化合物等を例示することができる。これらC成分は、A成分とB成分の和に対して0/100~90/10の割合、好ましくは

20/80~70/30の割合で配合される。尚、本発明の温熱湿布剤の充填剤としては天然繊維片を含ましめるのが好ましい。

次に、発熱速度と前記温熱の持続時間は空気又は酸素との接触面積等により、調整する事ができる。即ち、具体的には、A及びB成分の粒径、空気又は酸素の流入量、前記充填剤の種類又は量等の条件であり、本発明の温熱湿布剤として、A及びB成分の粒径は10~100メッシュが適当であり、好ましくは30~50メッシュが用いられ、これらは必要に応じて添加されるC成分と共に粉状のまゝでもよいし、粒状、ペレット状、シート状等に任意に成形してもよい。又同時に、空気又は酸素との接触面積については、96cm<sup>2</sup>当り0.5~1.0cm<sup>2</sup>が適当であり2~5cm<sup>2</sup>がより好ましい。

尚、空気又は酸素の供給方法は、前記の発熱剤の組成物を気密性の材料、たとえばプラスチックフィルム、金属箔等に収容し、これに穴を設ける方法、又、発熱剤の収容体に紙、布あるいは樹脂加工物等を用い、その通気性を利用する方法、更には通気性の充分な材料よりなる内装と気密性の

材料よりなる外装からなる構成を有しその外装に開閉自在又は調整自在の開口部を設ける方法等が上げられるが、好ましくは、布又は樹脂加工物を用い、その通気性を利用する方法である。

他で、本発明に用いる発熱剤は、空気又は酸素との接触を遮断することにより、発熱を中断することも可能であるところから、やむを得ず温熱湿布剤による治療を途中で中止、又再開することも可能である。

又、発熱剤の収容体材料は、前記空気又は酸素の供給方法に基づき選択されるが、天然繊維、合成繊維、プラスチックフィルム等が広く用いられ、特に一部又は全部に熱伝導が高い材料を選ぶことが好ましい。

次に、発熱剤の形態は前記組成からなる発熱剤を袋状にそのまま収容したもの、又は通気性の隔壁によって多数区画された収容体に各々充填したもの等が用いられるが、本発明の温熱湿布剤の形態としては、いずれにしてもシート形態が好ましい。又、これらは、<sup>用</sup><sub>生</sub>製造においては、A成分及びB成分の混合以

降は酸素ガス不在下で行うことが必要であり当然窒素、アルゴン、炭酸ガス等の不活性ガス中で行うことが望ましい。

抑、次は、発熱剤の下に位置される熱安定性の湿布剤層について詳細に説明する。

本発明に用いられる湿布剤層は前記した如く、(1)湿布用基剤、その他湿布剤に必要な物質及び湿布用薬剤を混合したもの、

(2)湿布用基剤及びその他湿布剤に必要な物質を混合したもの、

の二つの組成が存在する。

即ち、通常は湿布用薬剤を添加した湿布剤層が用いられるが、本発明の温熱湿布剤の効果は、湿布用薬剤未添加のもので十分達することができる。

以下、薬剤添加のもの及び未添加のものについて各々説明する。

まず前者において、湿布用基剤としては、カオリン、ベントナイト、タルク、ロウ、ワセリン、乳酸ソーダ、酸化亜鉛、ホウ酸、珪酸アルミニウム等を単独或いはこれらを適宜に組合させて用い

九  
製  
業九  
製  
業

る。

次に、その他湿布剤に必要な物質とは増粘剤、軟化剤、保湿剤等を意味し、これらにはアルギン酸ソーダ、メチルセルロース、カルボキシビニル重合体、カルボキシメチルセルロース、エチルセルロース、ポリビニールピロリドン、ポリビニールアルコール、ポリビニールメチルエーテル、ポリアクリル酸ナトリウム、トラガカントガム、タクチックポリプロピレン、グアヤコール、エステルガム、天然ゴムラテックス液、ゼラチン、流動パラフィン、シリコン、グリセリン、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール、ジエチルグリコールモノエチルエーテル、酸化マグネシウム、ソルビトール、キシリトール、尿素、酢酸アルミニウム、水酸化ベリリウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化バリウム及び水等が適宜組合わせて用いられる。

尚、本発明の温熱湿布剤としては、特にカオリン、酸化亜鉛、ゼラチン、カルボキシメチルセルロース、ポリアクリル酸ナトリウム、グリセリン、

特開昭53-47514 (4)  
ソルビトール及び水等を用いることが好ましい。

次に、湿布用薬剤としては、サリチル酸メチル、サリチル酸グリコール、サリチル酸、メントール、ハッカ油、カンフル、チモール、クレオソート、タウリン、ロートエキス、塩酸ジフェンヒドラミン、ジフェンヒドラミン、マーキュロクロム、焼黄柏、梅肉、山椒油、ボルネオール、エビロカイン等が単独或いは組合わせて用いられる。好ましくは、サリチル酸メチル、メントール、カンフル、チモール及びハッカ油等が温熱湿布剤として特に用いられる。

抑、湿布用基剤、その他湿布剤に必要な物質及び湿布用薬剤の配合比は、全体において、湿布用基剤が3~20重量部、その他湿布剤に必要な物質<sup>として湿布用薬剤が1~4重量部</sup>は7.6~9.6重量部配合されるものである。

次に後者、即ち、前記(4)の組成からなる湿布剤について、説明すると、湿布用基剤及びその他湿布剤に必要な物質は前記した前者のものが、そのまま用いられる。又、配合比は前者と相違し、全体において湿布用基剤が2~21重量部、そして

用業株式会社  
長有会社  
之根工藝  
印等二  
業

その他湿布剤として必要な物質は7.9~9.7重量部で用いられる。

本発明における湿布剤層を製造するに当つては夫れ夫れ、適當な量計量された原料を混練して糊状質膏体とすることが必要である。この為、原料を混合する順序は適宜選択される。例えば適當量の湿布用基剤に増粘剤、軟化剤及び保湿剤等の必要な物質を攪拌機に投与し加温しながら混練し、前者(4)の場合、湿布用薬剤を添加し、更に混練を続け、ペースト状の練合物を得る。これを展延したもののが本発明における湿布剤層となる。尚、この混練に際しては、高速攪拌機器を用いるのが好ましいが、非高速攪拌機器でも差しつかえない。又、混練時の温度は、約20~120°Cであり、混練時間は10~60分間である。又、湿布用薬剤の添加は湿布用基剤とその他湿布剤に必要な物質との混練時に一緒に添加しても差しつかえない。

次に、これらの練合物は展延塗布されるが原則として、前記した発熱剤層の片面、即ち、発熱剤収容体の片面に塗布される。しかし、発熱剤層と

湿布剤層を各々別途製造しておき、製造時もしくは治療時に両者を合体させて用いてもよい。尚、この場合、練合物の支持体には布地、不織布、紙、合成樹脂膜等から選択される。布地の原料は絹、毛、綿等の天然繊維、スフ、ビスコース、人絹等の人造繊維、ナイロン、ポリエスチル、アクリル、ウレタン等の合成繊維もしくはこれらの混合繊維等から選択される。更に布地は通常の非起毛布でもよく、ネル、ラシャ等の起毛布でも使用され得るが、一般にネル地のような起毛布が最も好ましい。

練合物を発熱剤層の片面又は別途支持体に展延塗布した後、その湿布剤層面に剥離被覆物を貼合するが、セロファン、ポリエチレン等のプラスチックフィルム等から適宜選択される。この場合、必要に応じては剥離被覆物に剥離剤を塗布したもの用いてもよい。

次に、本発明の温熱湿布剤における湿布剤層の熱安定性及び皮膚分泌物に対する耐溶解性等につき、以下の試験結果を示し説明する。尚、以下の

光  
製

実験において用いた本発明の湿布剤層は、後述する製造例1の配合のものを湿布剤層(1)及び製造例7のものを湿布剤層(2)として用いた。

#### (1) 温度特性に関する試験

##### ② 各温度条件下における粘度

試験方法：各試料を1g取り、島津製作所製高化式フロテスターに充填し、各温度条件下にて、 $15 \text{ kg/cm}^2$  加重下の $\frac{1}{2}$ 0分間放置後測定した。

用業社  
久  
製  
有  
義  
社  
印  
工  
業

特開昭53-47514 (5)

(単位: Poise)

試料	温度		40°C	50°C	60°C
	40°C	50°C			
A社製湿布剤	$3.16 \times 10^2$	$1.58 \times 10^2$	$1.00 \times 10^2$ 以下	$0.88 \times 10^2$	$1.00 \times 10^2$ 以下
B社製湿布剤	$8.33 \times 10^2$	$3.21 \times 10^2$	$3.21 \times 10^2$	$1.73 \times 10^2$	$1.65 \times 10^2$
本発明の湿布剤層(1)	$8.25 \times 10^2$	$3.15 \times 10^2$	$3.15 \times 10^2$	$1.73 \times 10^2$	$1.65 \times 10^2$
本発明の湿布剤層(2)					

試験結果：

製  
業  
社  
印

以上の結果から明らかに如く、本発明の湿布剤層は各温度条件下における粘度値が最も高く、温湿湿布剤として用いた場合でも、保型性に関しては何ら問題はないと思われる。

尚、通常湿布剤において $1.00 \times 10^2$  poise 以上の粘度値がないと、一般に湿布剤層の破壊、ダレ症状を呈し、使用に供し得ないことが多いとされている。

##### ③ 各温度条件下における経日的变化

試験方法：袋に充填されたままの各試料を田葉井製作所製ギヤーオーブン中に放置し、経日的に各試料の保型性非破壊日数を測定した。

尚、保型性非破壊日数とは膏体が流れたり、くずれたりしないで元の型のまま保たれている日数を意味するものである。

試験結果：

試料	温度	
	40°C	50°C
A社製湿布剤	15日	3日
B社製湿布剤	1~2日	1日以下
本発明の湿布剤層(1)	3ヶ月以上	2ヶ月
本発明の湿布剤層(2)	"	"

以上の結果から、本発明の湿布剤層は経日的熱安定性が他社製品に比べ非常に優れていることが明らかである。

##### (2) 皮膚分泌物に対する耐溶解性試験

本試験の目的は、湿布剤と皮膚面との間に汗等の分泌物が貯留し、これが皮膚面のベタッキ及び膏体の破壊等の原因となり温湿湿布剤の場合この傾向が当然大きくなることから、以下各湿布剤及び本発明の湿布剤層の水に対する耐溶解性を測定し、皮膚分泌物に対する

影響を見ることがある。

#### ④ 水に対する溶解性

試験方法：各試料の齊体を一定面積とり、それを各一定温度条件下に放置し更に低湿度から高湿度へと湿度を変化させ、各試料の吸水量及び発散量を測定し、各試料の重量が増加又は減少する時の湿度即ち転移湿度を測定した。この転移湿度の高低により水に対する溶解性を推定した。

## 試驗結果：

(单位: %)

試料	温度	40°C	50°C
A社製湿布剤		83	77
B社製湿布剤		73	50以下
本発明の湿布剤層(1)		88	83
本発明の湿布剤層(2)		86	80

久善製藥  
株式會社工  
業所販權專  
用社長之印

以上の結果から、本発明の湿布

卷之三

以上の結果から本発明の湿布剤層は他社製品に比べ温水溶解の危険は非常に小さく、耐水性に優れていることが明らかである。

以上温度特性に関する試験及び水に対する耐溶解性試験の各結果から明らかに如く、本発明の湿布剤層は他社製品に比べ、全ての面において優れており、膏体破壊、膏体の流れ及び汗等による溶解といった危険性は殆んどなく温熱湿布剤として、非常に適したものと判断される。

次に、本発明の特長の一つである薬剤の吸収促進作用について実験結果を示し説明する。

## 実験方法

## 試 料 :

試料としては後述する製造例4の温熱湿布剤(以下、本発明品という)を用い、又対照としては前記温熱湿布剤から発熱剤層を除いた湿布剤層のみのもの(以下、対照品という)を用いた。

### 被験者及び投与方法：



体重約 65kg の健康成人男子 5 名に投与した。先ず上記対照品の布面にアルミシートを貼り、各被験者の背部に 2 枚貼付し周囲を粘着テープで固定した。貼付時間は 6 時間とし、剝離後貼付部皮膚に付着した湿布剤はエタノールにて拭きとつた。

更に 1 週間後、同一被験者を用いて本発明品の貼付実験を行なつた。即ち、被験者の背部に 2 枚貼付し、発熱剤層の通気孔を避けて周囲を粘着テープで固定し、6 時間貼付後剝離した。

採血、採尿及び血中、尿中の全サリチル酸誘導体の定量：

試料貼付前に血液約 10 ml、尿約 50 ml をとり定量時の対照試料とした。

バップ剤貼付 30 分、1234512 時間後に前腕部静脈より約 5 ml を採血し、遠心後得られた血清の一部をとり全サリチル酸誘導体の定量を行なつた。

尿は貼付後 3, 6, 12, 24 時間までの全量を回

### 特開昭53-47514 (7)

収し、その一部をとり全サリチル酸誘導体の定量を行なつた。

定量に際しては先ず、血清尿中のサリチル酸メチルの代謝物を酸加水分解 (100°C, 16 時間) してサリチル酸とし、溶解抽出後アルカリ水溶液に逆抽出し、pH 10.6 で励起波長 300 nm, 測定波長 405 nm の螢光強度を測定した。螢光強度測定には日立分光螢光光度計 (204 型) を使用した。

#### 実験結果：

血清中の全サリチル酸誘導体をサリチル酸として定量した結果が第 1 図である。発熱剤層の発熱時間である 2 時間迄の濃度は対照品の約 2 倍となり、以後 6 時間迄の濃度も対照とは有意に高く、温熱湿布による吸収促進が認められた。全サリチル酸誘導体の尿中累積排泄量を貼付量に対する百分率で示した結果が第 2 図である。本発明品の場合対照品の 1.3 ~ 1.8 倍排泄量であり吸収促進が認められた。

尚、第 1 図及び第 2 図における各点は 5 人



の被験者の平均値土標準誤差を表わしており、\*印は危険率 5% の、又 \*\* 印は危険率 1% の有意差を示すものである。

次に、本発明の温熱湿布剤において発熱剤組成物の用量及び発熱剤収容体の気孔率に対する発熱温度及び持続時間の変化について参考例を示し、説明する。

#### 参考例 1

試料：後述する製造例 1 と同様な組成の発熱剤層において 8 × 12 cm の広さにおけるその組成物の用量を 30 g 又は 20 g と変化させ、更にその収容体であるポリエチレンフィルムの気孔率を各種変化させ、製造例 1 と同様な方法で発熱剤層を製造し、次に製造例 1 と同様な組成の湿布剤層を同様な方法で製造し前記発熱剤層と合体させ本試験の試料とした。

試験方法：試料を包装材から取り出し、37°C に一定調整されたステンレス製プレートに湿布剤層面を貼付し、湿布剤層貼付面の温度を表面温度計にて測定し、その一定な発熱温度及び持

続時間を求めた。

#### 試験結果：

発熱剤組成物 の用量 (g)	ポリエチレンフィルム の気孔率 (%)	発熱温度 (°C)	持続時間 (時間)
30	2.0	40	4
"	2.5	45	3
"	3.0	50	2
"	3.5	55	1
"	4.0	60	0.5
20	2.0	40	2
"	2.5	45	1
"	3.0	50	0.5

#### 参考例 2

試料：後述する製造例 2 と同様な組成の発熱剤層において、前記参考例 1 と同様な方法により発熱剤層を製造し、次に製造例 2 と同様な組成の湿布剤層を同様な方法で製造し、前記発熱剤層と合体させ本試験の試料とした。

特許業者

特許業者

試験方法：前記参考例1と同様な方法で行なつた。

## 試験結果：

発熱剤組成物の用量 (g)	ポリエチレンフィルムの気孔率 (%)	発熱温度 (°C)	持続時間 (時間)
3.0	2.0	3.8	4
"	2.5	4.0	3
"	3.0	4.5	1.5
"	3.5	5.1	0.5
"	4.0	5.9	0.2
2.0	2.0	3.6	2
"	2.5	4.1	0.6
"	3.0	4.5	0.2

## 参考例3

試料：後述する製造例3と同様な組成の発熱剤層において、前記参考例1と同様な方法により発熱剤層を製造し、次に製造例3と同様な組成の湿布剤層を同様な方法で製造し、前記発熱剤

特開昭53-47514(8)

層と合体させ本試験の試料とした。

試験方法：前記参考例1と同様な方法で行なつた。

## 試験結果：

発熱剤組成物の用量 (g)	ポリエチレンフィルムの気孔率 (%)	発熱温度 (°C)	持続時間 (時間)
3.0	2.0	4.3	3.5
"	2.5	4.7	2.5
"	3.0	5.3	1.5
"	3.5	5.9	0.5
"	4.0	6.3	0.3
2.0	2.0	4.2	1.5
"	2.5	4.7	0.6
"	3.0	5.3	0.2

前記詳述した如く、本発明は発熱剤層及び熱安定性の湿布剤層からなることを特徴とする温熱湿布剤であり、治療に際して大きな簡便さを有し、又短時間で湿布剤層に含有される薬剤の体内吸収

第

類

をはかる等の長所を有する。

又、本発明の温熱湿布剤は前記した如く、温熱療法の一つであり、鎮痛、鎮痙、消炎に大きな効果がみられるが、更に詳細には、神経痛、関節リウマチ、腱鞘炎、関節炎、腰痛、椎間板変性、上腕肩甲筋線維症、筋肉痛、膝痛、打撲、捻挫、骨折、頭痛、むち打ち症、胃弱、便秘症、冷え症、肩甲関節周囲炎、変形性関節症、肩関節委縮等の疾患の慢性期に適用すると特に好結果を与える。但し、細菌感染による化膿性疾患、高熱を伴つた疾患、出血している疾患等には本発明の温熱湿布剤の適用は好ましくない。

次に本発明の温熱湿布剤の適用量は14cm×10mmの大きさにおいて1日1～3回使用される。但し、患部の広さ、症状の重症度等から適宜その使用は増減してよい。

次に本発明の実施例として温熱湿布剤の製造例及びそれを用いた臨床例を示す。

## 製造例1

## 湿布剤層の製造：

## 酸化亜鉛 5重量部

ゼラチン	4
カルボキシメチルセルロース	6
ポリアクリル酸ナトリウム	4
グリセリン	3.0
水	4.8

を60°C～100°Cに調整した高速攪拌機にて20分間練込んだ。これに、

メントール	1.3重量部
カンフル	2.3
サリチル酸メチル	3.0
チモール	8
ハッカ油	2.6

の割合の混合液を全体の3重量部添加し10分間充分混練した。

以上の工程で得られた糊状質膏体をフランネルに厚さ約2mmで一様に展延塗布した。次にこの湿布剤面にポリエチレンフィルムを被覆した。

## 発熱剤層の製造：

## 硫酸ナトリウム・5水塩 50.0重量部



特開昭53-47514 (9)

炭化鉄	6.3	重量部
カーボンブラック	12.5	"
木綿リンター	15.6	"
芒硝	15.6	"

の組成物 30g を、 8 × 12 cm 、 嵩比重約 1 のシート状に加圧成型し、この成型物を基体ポリエチレンフィルム(厚さ 70 μ)に接着剤によって接着し、その上に気孔率 3.0 % を有するポリエチレンフィルムを積層して周囲を常法によりヒートシールした。更に、気孔を有するポリエチレンフィルムの上に和紙及びネルを積層した。

## 温熱湿布剤の製造：

前記発熱剤層の基体であるポリエチレンフィルムの下に接着剤層を介して、前記湿布剤層を積層し、これら一体の積層物を空気不透過性包装材で密封した。

## 製造例 2

## 湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	5	重量部
カオリン	2	"

シート状に加圧成型し、この成型物を基体ポリエチレンフィルム(厚さ 70 μ)に接着剤によって接着し、その上に気孔率 3.5 % を有するポリエチレンフィルムを積層して、周囲を常法によりヒートシールした。更に、気孔を有するポリエチレンフィルムの上に和紙及びネルを積層した。

## 温熱湿布剤の製造：

前記製造例 1 と同様な方法で製造した。

## 製造例 3

## 湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	10	重量部
ゼラチン	8	"
カルボキシメチルセルロース	3	"
ポリアクリル酸ナトリウム	0.5	"
グリセリン	2.0	"
ソルビトール	1.0	"
水	4.5.5	"

を 60 °C ~ 100 °C に調整した高速攪拌機にて 20 分間練込んだ。これに、

メントール	2.8	重量部
-------	-----	-----

## ゼラチン 2 重量部

カルボキシメチルセルロース	1.0	"
ポリアクリル酸ナトリウム	2	"
グリセリン	1.5	"
ソルビトール	1.5	"
水	4.6	"

を 60 °C ~ 100 °C に調整した高速攪拌機にて 20 分間練込んだ。これに、

## メントール 2.4 重量部

カンフル	1.4	"
サリチル酸メチル	2.4	"
チモール	2	"
ハッカ油	3.6	"

の割合の混合薬液を全体の 3 重量部添加し、その後製造例 1 と同様な方法による湿布剤を製造した。

## 発熱剤層の製造：

硫酸カリウム・5水塩	37.0	重量部
活性炭	18.5	"
おがくず	44.5	"

の組成物 30g を、 8 × 12 cm 、 嵩比重約 1 のシ

## カンフル 2.8 重量部

サリチル酸メチル	1.9	"
チモール	1.6	"
ハッカ油	9	"

の割合の混合薬液を全体の 3 重量部添加し、その後製造例 1 と同様な方法による湿布剤を製造した。

## 発熱剤層の製造：

多硫化ナトリウム	62.5	重量部
炭化鉄	18.7	"
ケイソウ土	18.8	"

の組成物 30g を、 8 × 12 cm 、 嵩比重約 1 のシート状に加圧成型し、この成型物を基体ポリエチレンフィルム(厚さ 70 μ)に接着剤により接着し、その上に気孔率 2.5 % を有するポリエチレンフィルムを積層して周囲を常法によりヒートシールした。更に気孔を有するポリエチレンフィルムの上に和紙及びネルを積層した。

## 温熱湿布剤の製造：

前記製造例 1 と同様な方法で製造した。

公報  
三葉公報  
三葉

特開昭53-47514(10)

## 製造例 4

湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	10 重量部
ゼラチン	8 "
カルボキシメチルセルロース	3 "
ポリアクリル酸ナトリウム	0.5 "
グリセリン	20 "
ソルビトール	10 "
水	45.5 "

を60°C～100°Cに調整した高速攪拌機にて20分間練込んだ。これに、サリチル酸メチルを全体の3重量部添加し、その後製造例1と同様な方法により湿布剤を製造した。

発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例1と同様な方法により温熱湿布剤とした。

## 製造例 5

湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	7 重量部
カオリン	4 "

グリセリン	1.5 重量部
ソルビトール	1.5 "
水	33 "

を60°C～100°Cに調整した高速攪拌機にて20分間練込んだ。これに、製造例1と同様な割合の混合薬液を全体の3重量部添加し、その後製造例1と同様な方法により湿布剤を製造した。

発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例3と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例1と同様な方法により温熱湿布剤とした。

## 製造例 7

湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	10 重量部
ゼラチン	9 "
カルボキシメチルセルロース	4 "
ポリアクリル酸ナトリウム	1.5 "
グリセリン	20 "
ソルビトール	10 "
水	45.5 "

ゼラチン 6 重量部

カルボキシメチルセルロース 3 "

ポリアクリル酸ナトリウム 2 "

ソルビトール 30 "

水 45 "

を60°C～100°Cに調整した高速攪拌機にて20分間練込んだ。これに、製造例2と同様な割合の混合薬液を全体の3重量部添加し、その後製造例1と同様な方法により湿布剤を製造した。

発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例2と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例1と同様な方法により温熱湿布剤とした。

## 製造例 6

湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	10 重量部
カオリン	5 "
ゼラチン	10 "
カルボキシメチルセルロース	8 "
ポリアクリル酸ナトリウム	1 "

を60°C～100°Cに調整した高速攪拌機にて25分間充分混練した。以上で得られた糊状質膏体を不織布に厚さ2mmで一様に展延塗布した。次にこの湿布剤面にポリエチレンフィルムを被覆した。

発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例1と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例1と同様な方法により温熱湿布剤とした。

## 製造例 8

湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	5 重量部
ゼラチン	3 "
カルボキシメチルセルロース	4 "
ポリアクリル酸ナトリウム	5 "
グリセリン	30 "
ソルビトール	10 "
水	43 "

を、前記製造例7と同様な方法により、湿布剤を製造した。

発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例 1 と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例 1 と同様な方法により温熱湿布剤とした。

#### 製造例 9

##### 湿布剤層の製造：

酸化亜鉛	5	重量部
カオリン	5	"
ゼラチン	6	"
カルボキシメチルセルロース	5	"
ポリアクリル酸ナトリウム	3	"
グリセリン	10	"
ソルビトール	20	"
水	45	"

を前記製造例 7 と同様な方法により、湿布剤を製造した。

##### 発熱剤層及び温熱湿布剤の製造：

前記製造例 1 と全く同様な発熱剤層を製造し、これを製造例 1 と同様な方法により温熱湿布剤とした。

次に、臨床例を示し、本発明の温熱湿布剤の臨

床応用につき説明する。

尚、以下の臨床例において、治療に用いられた温熱湿布剤は前記製造例 1 に示したものと同様なものである。

#### 臨床例 1 27才 男 痙攣性斜頭

3年来の項筋痛が増悪し、頸部筋の異常緊張により斜頭を呈するに至った。頸部に本発明品の温熱湿布剤を朝、夕 2 回使用することにより筋緊張がとれ、2,3 日後には頸の患側への回旋が可能となつた。

#### 臨床例 2 49才 女 急性腰痛症

重量物持上げの際ギックリ腰を起し、中腰に左れず、痛みは一日中あつたが、本発明の温熱湿布剤使用により一週後には完治した。

#### 臨床例 3 36才 女 絞扼性尺骨神経炎

神經剥離術後、術創部に眠れぬ程の痛みが持続し、著明な圧過敏性があるが、本発明の温熱湿布剤貼付中は全く痛みが消失した。但し、3 ~ 4 時間して本発明の温熱湿布剤が冷え切ると同様の愁訴が発現する。

#### 臨床例 4 53才 男 腰椎々間板変性

##### 左根性坐骨神経痛

体動時の腰痛、左下肢痛が年余亘って存続しているが、本発明の温熱湿布剤貼付中には症状が略消失し、1 週後には愁訴は半減した。

#### 臨床例 5 77才 女 両変形性膝関節痛

膝痛が数年前より起り、2 年前から水腫が発現した。本発明の温熱湿布剤貼付中には疼痛が殆なく、1 週後には運動痛、圧痛は半減した。

#### 臨床例 6 ~ 18

前記臨床例 1 ~ 5 に示した使用法とほぼ同様を用い方により、次表に示す如く各種疾患に良く奏効した。

臨床例番	年令	性別	病名	使用法		効果判定	
				朝、夕 2 回	5 日間	有効	効果
6 21	男	腰背筋痛	第三腰椎辺り痛	"	7 日間	有著	有著
7 43	男	急性腓腹筋痛	背筋痛	"	6 日間	有や有効	有や有効
8 73	女	急性腰痛症	第三腰椎辺り痛	"	7 日間	有著	有著
9 61	男	背筋痛	背筋痛	"	7 日間	有著	有著
10 63	男	デニッシュケルバーン腱鞘炎	第三腰椎辺り痛	"	7 日間	有著	有著
11 45	女	腰筋痛	腰筋痛	"	5 日間	有著	有著
12 26	女	腰筋痛	腰筋痛	"	1 日 1 回	5 日間	有著
13 51	男	腰椎々間板変性	腰筋痛	"	6 日間	有著	有著
14 57	女	腰筋痛	腰筋痛	"	7 日間	有著	有著
15 65	男	両変形性膝関節症	左膝内側々副韌帯損傷	"	6 日間	有著	有著
16 18	女	左膝内側々副韌帯損傷	右膝痛	"	7 日間	有著	有著
17 43	女	右膝痛	左膝筋肉水腫	"	6 日間	有著	有著
18 57	女	左膝筋肉水腫	"	"	"	"	"



久光製薬

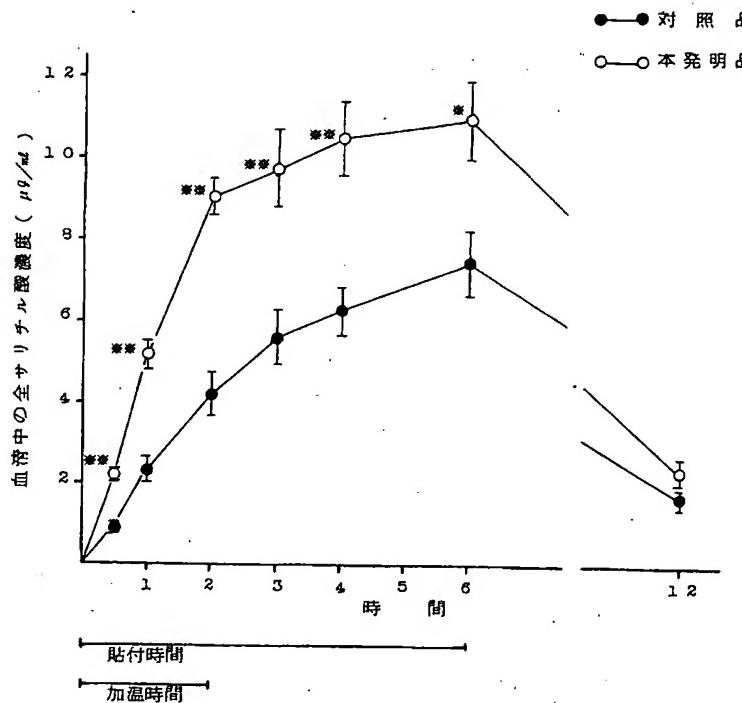
特開昭53-47514 (12)

## 4. 図面の簡単な説明

第1図は血清中の全サリチル酸誘導体をサリチル酸として定量した結果を示し、第2図は全サリチル酸誘導体の尿中累積排泄量を貼付量に対する百分率で示したものである。

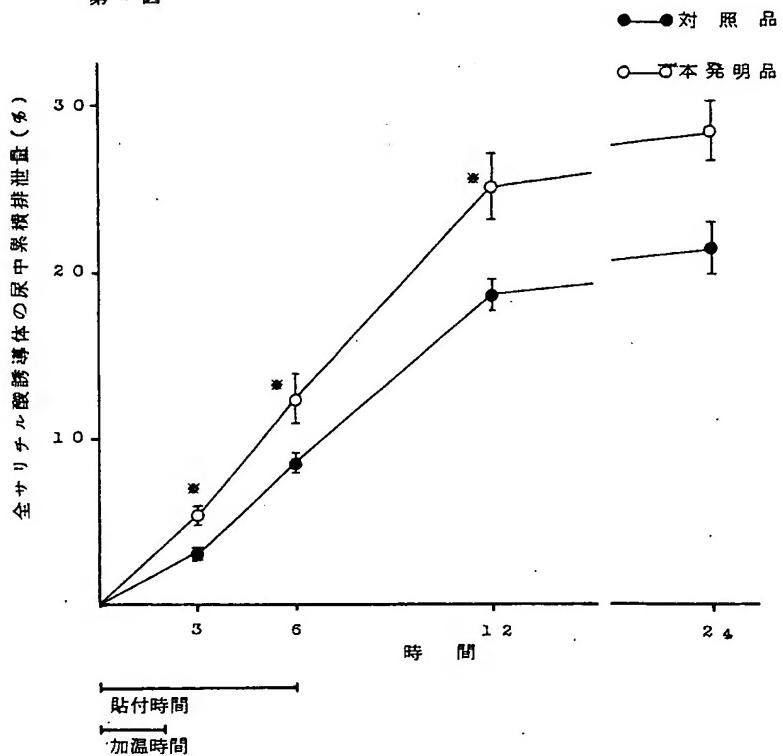
特許出願人 久光製薬株式会社  
東洋インキ製造株式会社

第1図



特開昭53-47514(13)

第2図



## 手 続 補 正 書 (自 発)

昭和52年12月28日

特許庁長官 鹿谷 哲二 殿  
(特許審査官)

## 1. 事件の表示

昭和51年 特許願 第119319号

## 2. 発明の名称

温熱湿布剤

## 3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住 所 佐賀県鳥栖市田代大官町408番地 (⑨ 841)

久光製薬株式会社

氏 名 代表者 中富正義 印鑑登録  
連絡先 09428 ⑨ 2101 山川秀機

## 4. 補正命令の日付 昭和 年 月 日 (自発)

5. 補正の対象 「3. 発明の詳細な説明」及び  
明細書中、「4. 図面の簡単な説明」の欄

## 6. 補正の内容

本願明細書中、下記の補正を致します。

特許庁

(1)明細書第6頁下から第1行目より明細書第7頁上  
から第1行目にかけて、「更には薬剤の殆どの吸収時間等の関係」を削除  
する。(2)同第13頁上から第1行目の「79~97」を、  
「79~98」に訂正する。(3)同第13頁上から第8行目の「投与」を、「投入」  
に訂正する。(4)同第23頁上から第5行目の「湿布剤」を、「サ  
リチル酸メチル」に訂正する。(5)同第23頁上から第11行目に「剥離後の皮膚は  
前記同様の処置をした。」と挿入する。(6)同第23頁下から第5行目の「5」を、「6」に  
訂正する。(7)同第24頁上から第3行目の「血清尿中」を、「  
血清及び尿中」に訂正する。(8)同第24頁上から第5行目の「溶解抽出後」を、  
「溶媒抽出後」に訂正する。(9)第1図の「血清中の全サリチル酸濃度 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )」  
を、「血清中の全サリチル酸誘導体濃度 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )」  
に訂正する。